Original document

# COMPOUND FOR ORGANIC ELECTROLUMINESCENT ELEMENT AND ORGANIC ELECTROLUMINESCENT ELEMENT

Publication number: JP2000344691

Publication date:

2000-12-12

Inventor:

INOUE TETSUJI; FUJITA TETSUJI; ARA KENSUKE

Applicant:

**TDK CORP** 

Classification:

- international:

C09K11/06; C07C15/28; H01L51/50; H05B33/14; H05B33/22; C09K11/06; C07C15/00;

H01L51/50; H05B33/14; H05B33/22; (IPC1-7): C07C15/28; C09K11/06; H05B33/14;

H05B33/22

- european:

Application number: JP19990157105 19990603 Priority number(s): JP19990157105 19990603

View INPADOC patent family

Report a data error here

# Abstract of JP2000344691

PROBLEM TO BE SOLVED: To obtain a compound useful as an optical and electronic functional material having small physical, photochemical and electrochemical changes, capable of obtaining an organic electroluminescent element having high reliability and luminous efficacy and various luminescent colors. SOLUTION: This compound is a derivative of phenyl anthracene expressed by formula: A1-L-A2 [A1 and A2 are each a mono(ortho-substituted phenyl) anthryl or di(ortho-substituted phenyl)anthryl; L is a single bond or a divalent bonding group, preferably, a compound expressed by formula (Ar1-Ar4 are each H, aryl, a heterocyclic aryl or the like; R1 and R2 are each an alkyl, aryl, aryl ether or the like; r1 and r2 are each 0 or 1-3; R3 is an alkyl or aryl; r3 is 0 or 1-3; L1 is a single bond, arylene or the like). The abovementioned compound is obtained by coupling, etc., a halogenated aryl anthracene compound with Ni(cod)2 (cod is 1,5-cyclooctadiene).

$$(H_2)_{r2}$$

$$(H_3)_{r3}$$

$$(H_3)_{r3}$$

$$Ar_4$$

$$(H_1)_{r1}$$

Data supplied from the esp@cenet database - Worldwide

# (19)日本国特許庁 (JP)

# (12)公開特許公報 (A)

# (11)特許出願公開番号

# 特開2000-344691

(P2000-344691A)

(43)公開日 平成12年12月12日(2000.12.12)

(51) Int. Cl. 7	識別記号		F I	15/00	· -		270	テーマコート	(参考)
C07C 15/28	610		CO7C			610	3K0 4H0		
C09K 11/06	615		COSK	11/06		615	400	06	
	620					620			
	635	審査請求	未請求	請求	項の数13	635 O L	(全33頁)	最終頁	に続く
(21)出願番号	特願平11-157105		(71)出	願人	00000306	7			
					ティーデ	ィーケ	イ株式会社		
(22) 出願日	平成11年6月3日(1999.6.3	)			東京都中	央区日:	本橋1丁目1	3番1号	
			(72)発	明者	井上 鉄	司			
					東京都中	央区日	本橋一丁目1	3番1号	ティ
					ーディー	ケイ株	式会社内		
			(72) 発	明者	藤田 徹	司			
					東京都中	央区日	本橋一丁目1	3番1号	ティ
					ーディー	ケイ株	式会社内		
			(74)代	理人	10008286	5			
					弁理士	石井	陽一		
								最終頁	に続く

(54) 【発明の名称】有機EL素子用化合物および有機EL素子

# (57) 【要約】

【課題】 結晶性が低く、アモルファス状態の良好な膜を形成することができ、特に青色発光材料や電子注入輸送材料として用いることができる有機EL素子用化合物を提供し、電流リークがなく、非発光部分(ダークスポット)の発生・成長がなく、膜中の結晶化が抑制されるので連続発光の信頼性が高く、特に発光層に用いた場合1万cd/m²以上の高輝度の青色発光が可能となるだけでなく、十分な発光効率、長寿命を有する有機EL素子を実現する。

【解決手段】 下記式 (I) で表されるフェニルアントラセン誘導体である有機 EL素子用化合物、およびこれを用いた有機 EL素子とした。

# 式(I)

# $A_1 - L - A_2$

[式(I)において、A:およびA:は、各々モノ(オルト置換フェニル)アントリル基またはジ(オルト置換フェニル)アントリル基を表し、これらは同一でも異なるものであってもよい。Lは単結合または二価の連結基を表す。〕

# 【特許請求の範囲】

【請求項1】 下記式 (I) で表されるフェニルアントラセン誘導体である有機 EL 素子用化合物。

#### 式(I)

# $A_1 - L - A_2$

[式(I)において、A:およびA:は、各々モノ(オルト置換フェニル)アントリル基またはジ(オルト置換フェニル)アントリル基を表し、これらは同一でも異なるものであってもよい。Lは単結合または二価の連結基を表す。]

【請求項2】 下記化1または化2で表される請求項1 の有機EL案子用化合物。

#### 【化1】

$$(R_2)_{r2}$$

$$(R_3)_{r3}$$

$$(R_1)_{r1}$$

$$Ar_3$$

$$(R_1)_{r1}$$

【化2】

$$(R_4)_4 \xrightarrow{(R_5)_5} L_2$$

【化1において、Arı ~Arı は、水素原子、アリール基、複素環アリール基またはアリールエテニル基を表し、Arı およびArı の少なくとも一方はアリール基、複素環アリール基またはアリールエテニル基である。Rı およびRı は、各々アルキル 40 基、アリール基、アリールエテニル基、アルコキシ基、またはアミノ基を表し、これらは同一でも異なるものであってもよい。r 1およびr 2は、各々、0または1~3の整数を表し、r 1およびr 2が、各々、2以上の整数であるとき、Rı 同士およびRı 同士は各々同一でも異なるものであってもよい。Rı は、アルキル基またはアリール基を表し、r 3は、各々、0または1~3の整数を表す。r 3が、2以上の整数であるとき、Rı は各々同一でも異なるものであってもよい。Lı は単結合またはアリーレン基を表し、アリーレン基はアルキレン 50

基、一〇一、一S一または一NR一(ここで、Rはアル キル基またはアリール基を表す。) が介在するものであ ってもよい。化2において、Ars およびArs は、水 素原子、アリール基、複素環アリール基またはアリール エテニル基を表し、Ars およびArs の少なくとも一 方はアリール基、複素環アリール基またはアリールエテ ニル基である。R. は、各々アルキル基、アリール基、 アリールエテニル基、アルコキシ基、またはアミノ基を 表し、これらは同一でも異なるものであってもよい。 r 4は、各々、0または1~3の整数を表し、r4が、各 々、2以上の整数であるとき、R. 同士は各々同一でも 異なるものであってもよい。 Rs は、アルキル基または アリール基を表し、r5は、各々、0または1~4の整 数を表す。 r 5 が、 2 以上の整数であるとき、Rs は各 々同一でも異なるものであってもよい。 L2 は単結合ま たはアリーレン基を表し、アリーレン基はアルキレン 基、-O-、-S-または-NR-(ここで、Rはアル キル基またはアリール基を表す。) が介在するものであ ってもよい。Lzは単結合またはアリーレン基を表し、 20 アリーレン基はアルキレン基、-O-、-S-または-NR-(ここで、Rはアルキル基またはアリール基を表 す。) が介在するものであってもよい。]

【請求項3】 前記化1において、Ari およびAri の少なくとも一方がフェニル基、ビフェニル基、ターフェニル基、スチリル基、フェニルスチリル基、ジフェニルスチリル基、チエニル基、メチルチエニル基、フェニルチエニル基またはフェニルビチエニル基である請求項2の有機EL素子用化合物。

【請求項4】 前記化2において、Ars およびA 30 rs 、の少なくとも一方がフェニル基、ビフェニル基、 ターフェニル基、スチリル基、フェニルスチリル基、ジ フェニルスチリル基、チエニル基、メチルチエニル基、 フェニルチエニル基またはフェニルビチエニル基である 請求項2のフェニルアントラセン誘導体。

【請求項5】 前記化1において、Ar: およびAr: 人 ないで、Ar: およびAr: の少なくとも一方がフェニル基、ビフェニル基またはターフェニル基であり、L: は単結合である請求項2の有機EL素子用化合物。

【請求項6】 前記化2において、Ars およびArs への少なくとも一方がフェニル基、ピフェニル基またはターフェニル基であり、Lz は単結合である請求項2の有機EL素子用化合物。

【請求項7】 請求項1の有機EL素子用化合物を含有する少なくとも1層の有機化合物層を有する有機EL素子

【請求項8】 前記有機EL素子用化合物を含有する有機化合物層が発光層である請求項7の有機EL素子。

【請求項9】 さらに、少なくとも1層のホール注入層と、少なくとも1層のホール輸送層と、少なくとも1層のの電子注入輸送層とを有する請求項8の有機EL素子。

【請求項10】 さらに、少なくとも1層のホール注入 層と、少なくとも1層のホール輸送層と、少なくとも1 層の電子輸送層と、少なくとも1層の電子注入層とを有 する請求項8の有機EL素子。

【請求項11】 前記有機EL素子用化合物を含有する 有機化合物層が電子注入輸送層であり、さらに発光層を 有する請求項7の有機EL素子。

【請求項12】 少なくとも1層の発光層を有し、この 発光層が電子注入輸送性化合物とホール注入輸送性化合 物との混合層であって、この混合層が前記有機EL素子 10 用化合物を含有する請求項7の有機EL素子。

【請求項13】 前記電子注入輸送性化合物は、前記有 機EL素子用化合物であり、前記ホール注入輸送性化合 物は、アミン、またはスチリルアミン系化合物である請 求項12の有機EL素子。

#### 【発明の詳細な説明】

#### [0001]

【発明の属する技術分野】本発明は、有機EL(電界発 光)素子に用いられる化合物関し、詳しくは、フェニル アントラセン誘導体である有機化合物、およびこの化合 20 物を有する積層構造薄膜に電界を印加して光を放出する 素子に関する。

#### [0002]

【従来の技術】有機EL素子は、蛍光性有機化合物を含 む薄膜を、陰極と陽極とで挟んだ構成を有し、前記薄膜 に電子およびホールを注入して再結合させることにより 励起子 (エキシトン) を生成させ、このエキシトンが失 活する際の光の放出(蛍光・燐光)を利用して発光する 素子である。

【0003】有機EL素子の特徴は、10V程度の低電 30 圧で100~数千cd/m² 程度の高輝度の面発光が可能で あり、また蛍光物質の種類を選択することにより青色か ら赤色までの発光が可能なことであるが、発光寿命が短 く、保存耐久性に劣るという問題点を有しており、これ らの問題点を解消するために現在様々な研究、開発が進 められている。

【0004】具体的には、高効率、長寿命化の手段とし て、蛍光量子収率の大きい蛍光性色素を少量ドーピング する方法(特開平05-198377号公報、特開平07-135077号 公報等)、また、発光層としてホール輸送性材料と電子 40 輸送性材料を混合したバイポーラ型発光層を用い、キャ リアの再結合領域を拡大し、再結合確率を向上させて高 効率素子を得る方法 (WO 98/0836号、特開平03-114197 号公報等)等が報告されている。

【0005】しかしながら、ドーピング法を用いる場 合、ドーパントとなる蛍光性色素の多くは濃度消光性が 強く、素子を作成する際は重量比にして数パーセントの レベルでのドーパント濃度の制御が必要となる。一般的 に低分子化合物を用いたEL素子は真空蒸着法で作成さ れることが多く、このような精密な濃度制御を行うこと 50 は容易ではなく、製造マージンを狭くする原因となって いる。さらに、ドーピングにより青い発光を得るために はエネルギーギャップの大きなドーパントを発光させる ため、ホストとなり得る材料は限定され、ドーパントの 組み合わせの選定は困難となる。

【0006】また、バイポーラ型発光層を用いた場合で も再結合確率は向上するものの、最終的にエネルギーを 光として取り出すためには高い蛍光量子収率を有するド ーパントの使用が必要となる場合が多い。しかも、この ようなバイポーラ型の混合発光層を用いると、駆動電圧 は比較的高くなってしまうという難点がある。

【0007】一方、本発明者らは、特開平08-12600号公 報で、物理的変化、光化学的変化、電気化学的変化の少 ないフェニルアントラセン誘導体を用いた高輝度発光素 子を開示しているが、視感度の低い青色の領域に関して は、十分な効率が得られておらず、また、発光寿命、耐 久性の面でも実用に向けてさらなる特性の向上が必要と されている。

# [0008]

【発明が解決しようとする課題】本発明の目的は、物理 的変化や光化学的変化、電気化学的変化の少ない光・電 子機能材料として新規な有機EL素子用化合物を提供 し、この有機EL素子用化合物を用い、極めて高い信頼 性および発光効率を有する種々の発光色を持った有機E L素子を実現することである。特に、分子量の大きな化 合物を蒸着法で形成した有機薄膜を用い、素子の駆動時 の駆動電圧上昇や輝度の低下、電流のリーク、部分的な 非発光部の出現・成長を抑えた高信頼性の高輝度発光素 子を実現することである。

# [0009]

【課題を解決するための手段】このような目的は、下記 (1)~(13)の本発明により達成される。

下記式(I)で表されるフェニルアントラセン 誘導体である有機EL素子用化合物。

#### 式(I)

#### $A_1 - L - A_2$

[式 (I) において、A: およびA2 は、各々モノ (オ ルト置換フェニル)アントリル基またはジ(オルト置換 フェニル)アントリル基を表し、これらは同一でも異な るものであってもよい。Lは単結合または二価の連結基 を表す。〕

(2) 下記化1または化2で表される上記(1)の有 機EL素子用化合物。

# [0010]

# 【化3】

[0011] 【化4】

$$(R_4)$$

$$Ar_6$$

$$Ar_6$$

$$Ar_6$$

$$2$$

【0012】 [化1において、Ari ~Ari は、水素 原子、アリール基、複素環アリール基またはアリールエ テニル基を表し、Ari およびArz 、Ars およびA r. の少なくとも一方はアリール基、複素環アリール基 またはアリールエテニル基である。R: およびR2 は、 各々アルキル基、アリール基、アリールエテニル基、ア ルコキシ基、またはアミノ基を表し、これらは同一でも 30 異なるものであってもよい。 r 1および r 2は、各々、 0または1~3の整数を表し、r1およびr2が、各 々、2以上の整数であるとき、R: 同士およびR2 同士 は各々同一でも異なるものであってもよい。R, は、ア ルキル基またはアリール基を表し、r3は、各々、Oま たは1~3の整数を表す。r3が、2以上の整数である とき、R,は各々同一でも異なるものであってもよい。 L: は単結合またはアリーレン基を表し、アリーレン基 はアルキレン基、一〇一、一S一または一NR一(ここ で、Rはアルキル基またはアリール基を表す。) が介在 40 するものであってもよい。化2において、Ars および Ar。は、水素原子、アリール基、複素環アリール基ま たはアリールエテニル基を表し、ArsおよびArsの 少なくとも一方はアリール基、複素環アリール基または アリールエテニル基である。R. は、各々アルキル基、 アリール基、アリールエテニル基、アルコキシ基、また はアミノ基を表し、これらは同一でも異なるものであっ てもよい。r4は、各々、0または1~3の整数を表 し、r4が、各々、2以上の整数であるとき、Ra同士

ルキル基またはアリール基を表し、r5は、各々、Oま たは1~4の整数を表す。r5が、2以上の整数である とき、Rs は各々同一でも異なるものであってもよい。 L. は単結合またはアリーレン基を表し、アリーレン基 はアルキレン基、-O-、-S-または-NR-(ここ で、Rはアルキル基またはアリール基を表す。) が介在 するものであってもよい。L2 は単結合またはアリーレ ン基を表し、アリーレン基はアルキレン基、-O-、-S-または-NR-(ここで、Rはアルキル基またはア 10 リール基を表す。)が介在するものであってもよい。〕

- (3) 前記化1において、Ari およびArz、Ar , およびAr, の少なくとも一方がフェニル基、ビフェ ニル基、ターフェニル基、スチリル基、フェニルスチリ ル基、ジフェニルスチリル基、チエニル基、メチルチエ ニル基、フェニルチエニル基またはフェニルビチエニル 基である上記(2)の有機EL素子用化合物。
- (4) 前記化2において、Ars およびArs 、の少 なくとも一方がフェニル基、ビフェニル基、ターフェニ ル基、スチリル基、フェニルスチリル基、ジフェニルス 20 チリル基、チエニル基、メチルチエニル基、フェニルチ エニル基またはフェニルビチエニル基である上記(2) のフェニルアントラセン誘導体。
  - (5) 前記化1において、Ari およびArz、Ar 、およびAr,の少なくとも一方がフェニル基、ビフェ ニル基またはターフェニル基であり、Li は単結合であ る上記(2)の有機EL素子用化合物。
  - (6) 前記化2において、Ars およびArs 、の少 なくとも一方がフェニル基、ビフェニル基またはターフ エニル基であり、L2 は単結合である上記(2)の有機 EL素子用化合物。
  - 上記(1)の有機EL素子用化合物を含有する (7) 少なくとも1層の有機化合物層を有する有機EL素子。
  - 前記有機EL素子用化合物を含有する有機化合 物層が発光層である上記 (7) の有機EL素子。
  - さらに、少なくとも1層のホール注入層と、少 なくとも1層のホール輸送層と、少なくとも1層の電子 注入輸送層とを有する上記(8)の有機EL素子。
  - (10) さらに、少なくとも1層のホール注入層と、 少なくとも1層のホール輸送層と、少なくとも1層の電 子輸送層と、少なくとも1層の電子注入層とを有する上 記(8)の有機EL素子。
  - 前記有機EL素子用化合物を含有する有機化 (11)合物層が電子注入輸送層であり、さらに発光層を有する 上記 (7) の有機EL素子。
  - (12) 少なくとも1層の発光層を有し、この発光層 が電子注入輸送性化合物とホール注入輸送性化合物との 混合層であって、この混合層が前記有機EL素子用化合 物を含有する上記(7)の有機EL素子。
- 前記電子注入輸送性化合物は、前記有機EL は各々同一でも異なるものであってもよい。 R。は、ア 50 素子用化合物であり、前記ホール注入輸送性化合物は、

アミン、またはスチリルアミン系化合物である上記 (12) の有機 E L 素子。

#### [0013]

【作用】本発明の有機EL素子は上記式(I)、好ましくは上記化3, 化4に示される化合物を発光層に用いるため、1000cd/m<sup>-2</sup>程度、あるいはそれ以上の高輝度が安定して得られる。また、耐熱性・耐久性が高く、素子電流密度も1000mA/cm<sup>-2</sup>程度でも安定した駆動が可能である。

【0014】特に、上記化合物は、フェニル基の2位ま 10 たは6位 (アントラセン環への結合位置に対してオルト位) に、アリール基、複素環アリールもしくはアリールエテニル基を導入しているため、エキサイマーやエキサイプレックス等の分子間相互作用が殆どなく、色純度の低下や効率の低下が極めて少ないため、信頼性及び発光効率の高い有機EL素子を得ることができる。

【0015】また、オルト位の置換基が、本発明の化合物のようなπ電子共役系として延びていると、キャリアの輸送性を向上させ、素子の駆動電圧を低下させることができる。

【0016】上記化合物の蒸着膜は安定なアモルファス 状態なので、薄膜の膜物性が良好となりムラがなく均一 な発光が可能である。また、大気下で一年以上安定であ り結晶化を起こさない。

【0017】また、クロロホルム等へ溶解するスピンコート等の湿式成膜プロセスにおいても安定なアモルファス状態の薄膜を形成することが可能である。

【0018】また、本発明の有機EL素子は、低駆動電 圧で効率よく発光する。

【0019】なお、本発明の有機EL素子の発光極大波 30 長は、400~700nm程度であり、特に400~50 0nmの領域で効率よく発光する。

#### [0020]

【発明の実施の形態】以下、本発明の具体的構成について詳細に説明する。本発明のフェニルアントラセン誘導体は式(I)で示されるものである。式(I)について説明すると、A. およびA. は、各々モノ(オルト置換フェニル)アントリル基またはジ(オルト置換フェニル)フェニルアントリル基を表し、これらは同一でも異なるものであってもよい。

【0021】A1、A2で表されるモノ(オルト置換フェニル)フェニルアントリル基またはジ(オルト置換フェニル)フェニルアントリル基は、フェニル基の2位または6位(アントラセン環への結合位置に対してオルト位)に、アリール基、複素環アリール基もしくはアリールエテニル基を有するものである。また、オルト位以外に置換基を有するものであってもよく、置換基を有する場合の置換基としては、アルキル基、アリール基、アリールエテニル基、アルコキシ基、アミノ基等が挙げられていてまた。

れらの置換基については後述する。

【0022】また、アントラセン環におけるフェニル基の結合位置はアントラセン環の9位、10位であることが好ましい。

【0023】式(I)において、Lは単結合または二価の基を表すが、Lで表される二価の基としてはアルキレン基等が介在してもよいアリーレン基が好ましい。このようなアリーレン基については後述する。

【0024】式(I)で示されるフェニルアントラセン 誘導体のなかでも、化3、化4で示されるものが好まし い。化3について説明すると、化3において、Ar、 $\sim Ar$ ,は、水素原子、アリール基、複素環アリール基または アリールエテニル基を表し、R、およびR。は、各 $\alpha$ アルキル基、アリール基、アリールエテニル基、アルコキシ基またはアミノ基を表し、R、は、アルキル基または アリール基を表す。

【0025】Arı ~Arı およびRı ~R, で表されるアリール基としては、炭素数6~20のものが好ましく、さらにはフェニル基、トリル基等の置換基を有するものであってもよい。具体的には、フェニル基、(oー, mー, pー)トリル基、ピレニル基、ナフチル基、アントリル基、ビフェニル基、フェニルアントリル基、トリルアントリル基等が挙げられる。

【0026】Ar: ~Ar. で表される複素環アリール 基としては、フリル基、ベンゾフリル基、チエニル基、ベンゾチエニル基、ピロリル基、N-アリルピロリル基、インドリル基、ピリジル基、ビピリジル基、キノリル 基、キノキサリル基、オキサゾール基、ベンゾオキサゾール基、オキサジアゾール基、チアゾール基、ベンゾチアゾール基、チアジアゾール基、イミダゾール基等が好ましく、さらには、炭素数42以下のアリール基、炭素数12以下のアルキル基、アルコキシ基、アリロキシ 基、アミノ基、シアノ基、ニトロ基等の置換基を有するものであってもよい。具体的には、具体的には、フェニル基、(o-, m-, p-) ドフェニル基、プロピル基、ブチル基、メトキシ基、エトキシ基、フェノキシ基、(o-, m-, p-) トリル基等が挙げられる。

【0027】Arı~Arı、RıおよびR₂で表されるアリールエテニル基としては、2-フェニルエテニル基、2、2-ジフェニルエテニル基等が好ましく、さらにはアリール基、アルキル基、アルコキシ基、アリロキシ基、アミノ基、シアノ基、ニトロ基等の置換基を有するものであってもよい。具体的にはフェニル基、(o-, m-, p-) ビフェニル基、(1, 2) ナフチル基、メチル基、エチル基、プロピル基、ブチル基、メトキシ基、エトキシ基、フェノキシ基、(o-, m-, p-) トリル基等が挙げられる。

ールエテニル基、アルコキシ基、アミノ基等が挙げら 【0028】 $R_1 \sim R_3$  で表されるアルキル基としてれ、これらの置換基はさらに置換されていてもよい。こ 50 は、直鎖状でも分岐を有するものであってもよく、炭素

30

9

数1~10、さらには1~4の置換もしくは無置換のアルキル基が好ましい。特に、炭素数1~4の無置換のアルキル基が好ましく、具体的にはメチル基、エチル基、(n-, i-) プロピル基、(n-, i-, s-, t-) ブチル基等が挙げられる。

【0029】R, およびR, で表されるアルコキシ基としては、アルキル基部分の炭素数が1~6のものが好ましく、具体的にはメトキシ基、エトキシ基等が挙げられる。アルコキシ基は、さらに置換されていてもよい。

【0030】R: およびR: で表されるアミノ基は、無 10 置換でも置換基を有するものであってもよいが、置換基を有することが好ましく、この場合の置換基としてはアルキル基 (メチル基、エチル基等)、アリール基 (フェニル基等)などが挙げられる。具体的にはジエチルアミノ基、ジフェニルアミノ基、ジ (mートリル)アミノ基等が挙げられる。

【0031】化3において、r1およびr2は、各々、0または1~3の整数を表し、特に、0~2であることが好ましい。r1およびr2が、各々、1~3の整数、特に1または2であるとき、Ri およびRi は、各々、メチル基、フェニル基であることが好ましい。

【0032】化3において、r3は、各々、0または1~3の整数を表し、特に、0~2であることが好ましい。r3が、各々、1~3の整数、特に1または2であるとき、R3は、各々、34チル基、フェニル基であることが好ましい。

【0033】化3において、 $R_1 \sim R_3$  は同一でも異なるものであってもよく、 $R_1$  、 $R_2$  と $R_3$  とが各々複数存在するとき、 $R_1$  同士、 $R_2$  同士、 $R_3$  同士は各々同一でも異なるものであってもよい。

【0034】化3において、L1は単結合またはアリーレン基を表す。L1で表されるアリーレン基としては、無置換であることが好ましく、具体的にはフェニレン基、ビフェニレン基、アントリレン基等の通常のアリーレン基の他、2個ないしそれ以上のアリーレン基が直接連結したものが挙げられる。L1としては、単結合、pーフェニレン基、4,4'ービフェニレン基等が好ましい。

【0035】また、L:で表されるアリーレン基は、2個ないしそれ以上のアリーレン基がアルキレン基、-O40-、-S-または-NR-が介在して連結するものであってもよい。ここで、Rはアルキル基またはアリール基を表す。アルキル基としてはメチル基、エチル基等が挙げられ、アリール基としてはフェニル基等が挙げられる。なかでも、アリール基が好ましく、上記のフェニル基のほか、A:、A:であってもよく、さらにはフェニル基にA:またはA:が置換したものであってもよい。【0036】また、アルキレン基としてはメチレン基、エチレン基等が好ましい。このようなアリーレン基の具体例を以下に示す。50

【0037】 【化5】

【0038】次に、化4について説明すると、化4において、R・は化3におけるR・またはR2 と、またR6 は化3におけるR3 と、r4 は化3におけるr1 またはr2 と、さらにL2 は化3におけるL1 とそれぞれ同義であり、好ましいものも同様である。

【0039】また、化4において、r5は、各 $\phi$ 、0または $1\sim4$ の整数を表し、特に、 $0\sim2$ であることが好ましい。r5が、各 $\phi$ 、 $1\sim3$ の整数、特に1または2であるとき、Rs は、各 $\phi$ 、メチル基、フェニル基であることが好ましい。

【0040】化4において、R, とR。とは同一でも異なるものであってもよく、R, とR。が各々複数存在するとき、R, 同士、R。同士は、各々同一でも異なるものであってもよい。

【0041】化3、化4で表される化合物を以下に例示するが、本発明はこれらに限定されるものではない。なお、表中の略号のうちN(Toly):は、N(トリル):を表す。

50 [0042]

【表1】

【0043】 【表2】

11

No.	Ar <sub>1</sub>	R <sub>36</sub> R <sub>2</sub>	17 R <sub>46</sub> Ar <sub>3</sub>	Ar <sub>4</sub>	R <sub>13</sub>	R <sub>14</sub>	R <sub>15</sub>	R <sub>23</sub>	R <sub>24</sub>	R <sub>25</sub>	R <sub>32-37</sub>	R <sub>42-47</sub>
1-1	—Ph	—н	—Ph	—н	-н	—н	-н	-н	-н	—н	—н	-н
1-2	—Ph	-н	-Ph	—н	—Ph	—н	—н	—Ph	—н	—н	—н	—н
1-3	—Ph	-н	-Ph	-н	-н	—Ph	<del>-</del> н	-н	—Ph	—н	-н	-н
1-4	Ph	—н	—Ph	—н	—н	—н	Ph	-н	-н	—Ph	-н	-н
1-5	-Ph	-н	-Ph	—н	-Ме	—н	—н	-Me	-н	~н	-н	—н
1-6	—Ph	—н	-Ph	-н	<del>-</del> н	Me	—н	-н	—ме	—н	—н	—н
1-7	—Ph	-н	—Ph	-н	—н	<del>-</del> н	-Me	-н	-н	—Ме	—н	—н
1-8	—Ph	—н	—Ph	—н	—н	-OPh	—н	-н	-OPh	-н	—н	—н
1-9	—Ph	—н	-Ph	-н	-н	-OMe	—н	—н	-OMe	-н	—н	—н
1-10	—Ph	—н	-Ph	-н	-н	<b>⊸</b> T≻Me	—н	-н-	-(Т)-м	е —н	—н	—н
1-11	Ph	—н	—Ph	н	—н	—p-Врh	—н	—н	—p-Bph	—н	—н	—н
1-12	—Ph	—н	-Ph	-н	-н	-m-Bph	—н	-н	-m-Bph	—н	—н	—н
1-13	<b></b> Ph	—н	—Ph	-н	-н	-o-Bph	—н	-н	— o-Bph	-н	-н	—н
1-14	Ph	-н	—Ph	-н	—н	-NPh <sub>2</sub>	—н	<b>—н</b> .	-NPh <sub>2</sub>	-н	-н	—н
1-15	—Ph	-н	—Ph	-н	—н	-N(Toly)2	—н	-н	-N(Tob	<sub>y)2</sub> —н	-н	-н
1-16	—Ph	-н	—Ph	-н	—н _	@~@	—н	-н.	<b>⊕</b> ∿(	_н	-н	—н
1-17	Ph	-н	Ph	-н	—н .	-@ <sub>}-@</sub>	—н	-н	-0 <sub>3</sub> -(	҈ −н	-н	-н
_						_		- •	_			

【0044】 【表3】

		13	}								14	
No.	Ar <sub>1</sub>	Ar <sub>2</sub>	Ar <sub>3</sub>	Ar <sub>4</sub>	R <sub>13</sub>	R <sub>14</sub>	R <sub>15</sub>	R <sub>23</sub>	R <sub>24</sub>	R <sub>25</sub>		R <sub>42-47</sub>
1-18	—Ph	—Ph	—Ph	—Ph	-н	—н	-н	-н	-н	-н	—н	-н
1-19	—Ph	—Ph	Ph	—Ph	—Ph	<del>-</del> н	~н	—Ph	—н	-н	-н	—н
1-20	—Ph	—Ph	—Ph	—Ph	-н	—Ph	-н	-н	—Ph	-н	-н	н
1-21	—Ph	—Ph	—Ph	—Ph	—н	—н	—Ph	-н	н	—Ph	-н	—н
1-22	—Ph	Ph	—Ph	—Ph	<b>—</b> Ме	—н	-н	<b>-</b> Ме	—н	-н	—н	н
1-23	Ph	—Ph	—Ph	—Ph	-н .	Me	—н	—н	-Me	-н	—н	—н
1-24	Ph	-Ph	—Ph	—Ph	—н	—н	-Me	—н	-н	Me	: —н	—н
1-25	—Ph	—Ph	—Ph	—Ph	-н	-OPh	—н	-н	-OPh	—н	—н	—н
1-26	-Ph	Ph	—Ph	—Ph	—н	-OMe	-н	-н	—ОМе	-н	-н	-н
1-27	-Ph	-Ph	—Ph	—Ph	—н	<b>√</b> Me	-н -	-{	е —н	-н	—н	—н
1-28	—Ph	Ph	—Ph	—Ph	—н	—p-Bph	-н	—н	—p-Врh	-н	—н	-н
1-29	—Ph	—Ph	—Ph	Ph	—н	-m-Bph	-н	—н	-m-Bph	<del>-</del> н	-н	—н
1-30	-Ph	Ph	—Ph	—Ph	—н	—o-Врh	-н	—н	-o-Bph	-н	—н	-н
1-31	-Ph	-Ph	—Ph	—₽h	-н	-NPh <sub>2</sub>	—н	<b></b> H	-NPh <sub>2</sub>	—н	-н	-н
1-32	—Ph								-N(Toly)2			
1-33	—Ph	—Ph	-Ph	—Ph	—н -	_ 	, <del>–</del> н	—н	-@~\@	-н	—н	—н
1-34	Ph	—Ph	—Ph	-Ph	<del>-</del> н ¯		-н	—н	<del></del>	<b>–</b> н	-н	—н

[0045]

16

No.	Ar <sub>1</sub>	Ar <sub>2</sub>	Ar <sub>3</sub>	Ar <sub>4</sub>	R <sub>13</sub>	R <sub>14</sub>	R <sub>15</sub>	R <sub>23</sub>	R <sub>24</sub>	R <sub>25</sub>	R <sub>32-37</sub>	R <sub>42-47</sub>
1-35	p-Bph	-н	—p-Bph	-н	-н	—н	-н	—н	-н	—н	~н	—н
1-36	p-Bph	-н	—p-8ph	-н	—Ph	—н	-н	—Ph	-н	-н	—н	—н
1-37	p-Bph	-н	—p-Bph	-н	-н	—Ph	-н	~н	—Ph	—н	—н	—н
1-38	—p-Bph	-н	p-Bph	н	-н	—н	—Ph	—н	-н	—Ph	—н	-н
1-39	-m-Bph	-н	-m-Bph	-н	-н	—н	-н	-н	-н	—н	-н	-н
1-40	-m-Bph	-н	—m-Bph	-н	Ph	—н	<u>,</u> —н	—Ph	-н	-н	-н	-н
1-41	-m-Bph	-н	-m-Bph	-н	—н	—Ph	-н	—н	—Ph	-н	-н	-н
1-42	-m-Bph	-н	-m-8ph	<u>-</u> н	-н	—н	—Ph	-н	—н	—Ph	—н	-н
1-43	—о-Врһ	—н	o-Bph	-н	—н	—н	-н	—н	—н	-н	-н	—н
1-44	—o-Bph	-н	o-Bph	—н	—Ph	-н	-н	-Ph	-н	—н	-н	-н
1-45	-o-Bph	-н	—o-Врh	-н	-н	—Ph	—н	—н	—Ph	-н	-н	-н
1-46	—o-Bph	-н	-o-Bph	—н	-н	—н	—Ph	-н	-н	—Ph	н	-н
1-47	—p-Врh	-н	<b>—</b> р-Врһ	-н	-н	—o-Bph	-н	—н	-o-Bph	—н	н	-н

1-48 —p-Bph  $_{-H}$  —p-Bph  $_{-H}$  —H —NPh $_{2}$  —H —H —NPh $_{2}$  —H —H —H

1-49 —p-Врh —н —p-Врh —н —н —N(Toly)<sub>2</sub> —н —н —N(Toly)<sub>2</sub>—н —н

1-50 —p-Врћ —Н —p-Врћ —Н —Н —О —О —Н —Н —О —— —Н

17

_	No.	Ar <sub>1</sub>	Ar <sub>2</sub>	Ar <sub>3</sub>	Ar <sub>4</sub>	R <sub>13</sub>	R <sub>14</sub>	R <sub>15</sub>	R <sub>23</sub>	R <sub>24</sub>	R <sub>25</sub> R <sub>32-37</sub> R <sub>42-47</sub>
	1-52	— p-Врh	—p-Bph	—p-Bph	—p-Врh	—н	-н	-н	-н	—н	-н -н -н
	1-53	—p-8ph	—p-Врh	—р-Врһ	—p-Bph	Ph	-н	-н	—Ph	—н	-н -н -н
	1-54	p-Bph	—p-Врh	—p-Bph	—p-Bpn	-н	—Ph	-н	-н	—Ph	-н -н -н
	1-55	p-Bph	—p-Bph	—p-Bph	—р-Врһ	н	—н	—Ph	-н	-н	—Рh —Н —Н
	1-56	-m-Bph	-m-Bph	-m-Bph	-m-Bph	-н	-н	-н	~н	—н	-н -н -н
	1-57	-m-Bph	-m-Bph	-m-Bph	—m-Bph	—Ph	—н	-н	—Ph	<del>-</del> н	.—н —н —н
	1-58	-m-Bph	-m-Bph	-m-Bph	-m-Bph	-н	-Ph	-н	-н	Ph	-н -н -н
	1-59	—m-Bph	-m-Bph	-m-Bph	—m-Bph	—н	-н	—Ph	—н	—н	PhHH
	1-60	-o-Bph	o-8ph	-o-Bph	—o-Bph	—н	—н	—н	-н	—н	-н -н-н
	1-61	o-Bph	-o-Bph	—o-Врh	—o-Bph	—Ph	-н	-н	—Ph	-н	-н -н -н
	1-62	—o-Bph	-o-Bph	—o-Bph	o-Bph	-н	—Ph	-н	-н	-Ph	-н -н -н
	1-63	-o-Bph	-o-Bph	— o-Bph	<b>-</b> o-Bph	н	-н	—Ph	—н	<b>-</b> H	—Ph —н —н
	1-64	—p-Bph	—p-Врh	—p-Bph	—p-Bph	-н -	-o-Bph	-н	-н ·		-н -н <del>-</del> н
	1-65	—p-Bph	—p-Bph	—p-Bph	—р-Врһ	-н	-NPh2	—н	-н	-NPh <sub>2</sub>	<b>-н -н -н</b>
	1-66	-p-Bph	-p-8ph	—p-Bph	—p-Врh	-н-	-N(Toly) <sub>2</sub>	н	-н	—N(Toly)	)₂—н —н —н
	1-67	—p-Bph	—p-Bph	—p-Bph	—p-Bph	-н-€	<u></u>	-н	–н -	₽	<b>&gt;−н −н−н</b>
	1-68	<b>—</b> р-Врһ	—p-Bph	-p-8ph	—p-Bph	–н-€		—н	<b>—</b> н <sup>–</sup>		» <sub>—н —н</sub>
[0048	1					_	【表	7]			
	R <sub>24</sub> -	F <sub>23</sub> Ar <sub>3</sub> (	R <sub>32</sub> R <sub>33</sub> F	Ar <sub>1</sub>	R <sub>13</sub>	—р-Тр —	<u> </u>	<b>\</b>	<b>&gt;</b>	—o-TP	
		H <sub>25</sub> Ar <sub>4</sub>	R <sub>37</sub> R <sub>36</sub> R	Ar <sub>2</sub> 47 R <sub>46</sub>	R <sub>15</sub>	<b></b> р,о-Т	p =			—o,р-Т	Tp =
	—m-1	Tp =									
	-m,o	o-Tp =		—m,p-	Tp =	<b>)</b> // <b>)</b>	—р,m-Е	8p =	<b>-</b> >	—o,m∙	-Tp =
			}=-/ }					# N	\	<u> </u>	

[0049]

			19									20	
	No.	Ar <sub>1</sub>	Ar <sub>2</sub>	Ar <sub>3</sub>	Ar <sub>4</sub>	R <sub>13</sub>	R <sub>14</sub>	R <sub>15</sub>	R <sub>23</sub>	R <sub>24</sub>	R <sub>25</sub>	R <sub>32-37</sub>	R <sub>42-47</sub>
	1-69	—р-Тр	—р-Тр	р-Тр	—р-тр	-н	—н	-н	-н	—н	-н	—н	—н
	1-70	—р-Тр	—н	—р-Тр	—н	-н	-н	-н	—н	-н	-н	—н	-н
	1-71	<b>—</b> р-Тр	—н	—p-Тр	-н	-н	-Ph	-н	—н	—Ph	-н	-н	-н
	1-72	—р-Тр	—н	—p-Tp	н	-н	-н	—Ph	—н	-н	—Ph	—н	-н
	1-73	—р-Тр	-н	—р-Тр	-н	-Ph	—н	-н	—Ph	—н	-н	—н	-н
	1-74	<del>-</del> р-Тр	<b>-</b> СН <sub>3</sub>	<b>—</b> р-Тр	-сн <sub>3</sub>	-н	—н	—н	-н	—н	н	—н	-н
	1-75	-m-Tp	-m-Tp	-m-Tp	—р-Тр	-н	-н	-н	—н	-н	-н	—н	-н
	1-76	-т-Тр	—н	-m-Tp	<b></b> H	-н	-н	-н	—н	—н	—н	-н	-н
	1-77	о-Тр	-о-Тр	<b>—</b> о-Тр	—o-Тр	-н	-н	-н	н	-н	-н	—н	н
	1-78	—о-Тр	—н	—o-Тр	-н	-н	-н	-н	-н	-н	—н	—н	—н
	1-79	—p,o-Т	-н	<b>—</b> р,о-Тр	<del>-</del> н	-н	-н	—н	—н	—н	—н	-н	—н
	1-80	—о,р-Тр	-н	—о,р-Тр	-н	-н	—н	-н	—н	-н	—н	-н	—н
	1-81	—p,m-Т	р —н	—p,m-Т	р —н	-н	—н	-н	—н	-н	-н	-н	—н
	1-82	-m,p-T	р —Н	m,р-Т	р <del>—</del> н	-н	-н	—н	—н	—н	—н	—н	—н
	1-83	-m,o-T	р —н	-m,o-T	р —Н	-н	—н	—н	—н	-н	-н	-н	—н
0050	1-84 ) ]	— o,m-T	р —н	—o,m-T	р —н	-н	-н	[00	51]	—н	—н	—н	—н
表9】		Roo S	300 B40 I	D				【表 1	0]				

		21									22	
No.	Ar <sub>1</sub>	Ar <sub>2</sub>	Ar <sub>3</sub>	Ar <sub>4</sub>	R <sub>13</sub>	R <sub>14</sub>	R <sub>15</sub>	R <sub>23</sub>	R <sub>24</sub>	R <sub>25</sub>	P <sub>32-37</sub>	R <sub>42-47</sub>
1-85	~-Ph	-н	-Ph	-н	-н	-н	-н	—н	—н	—н	R <sub>32</sub> =Ph	fl <sub>43</sub> =Ph
1-86	-Ph	-н	Ph	-н	-н	-н	-н	-н	—н	—н	R <sub>32</sub> =Ph R <sub>37</sub> =Ph	R <sub>43</sub> =Ph R <sub>48</sub> =Ph
1-87	Ph	-н	—Ph	—н	-н	-н	-н	-н	—н	—н	R <sub>32</sub> ≃Ph R <sub>36</sub> =Ph	R <sub>43</sub> =Ph R <sub>47</sub> =Ph
1-88	—Ph	—Ph	—Ph	—Ph	-н	—н	-н	—н	—н	-н	R <sub>32</sub> =Ph	R <sub>43</sub> ≃Ph
1-89	<b>—</b> Ph	<b>-</b> −Ph	Ph	—Ph	-н	-н	-н	—н	<del></del> н	-н	R <sub>32</sub> =Ph R <sub>37</sub> =Ph	R <sub>43</sub> =Ph R <sub>46</sub> =Ph
1-90	—Ph	—Ph	—Ph	Ph	-н	—н	-н	—н	—н	-н	R <sub>32</sub> =Ph R <sub>36</sub> =Ph	R <sub>43</sub> =Ph R <sub>47</sub> =Ph
1-91	Ph	-н	—Ph	—н	-н	—н	—н	-н	-н	—Н	R <sub>32</sub> =Me	R <sub>43</sub> =Me
1-92	Ph	-н	—Ph	-н	-н	—н	-н	—н	—н	-н	R <sub>32</sub> =Me R <sub>37</sub> ≕Me	R <sub>43</sub> =Me R <sub>48</sub> =Me
1-93	—Ph	-н	—Ph	-н	-н	-н	-н	—н	-н	-н	R <sub>32</sub> =Me R <sub>36</sub> =Me	R <sub>43</sub> =Me R <sub>47</sub> =Me
1-94	—Ph	-Ph	—Ph	—Ph	—н	—н	—н	—н	-н	—н	R <sub>32</sub> =Me	R <sub>43</sub> =Me
1-95	—Ph	—Ph	—Ph	—Ph	—н	—н	—н	—н	-н	—н	R <sub>32</sub> =Me R <sub>37</sub> =Me	R <sub>43</sub> =Me R <sub>46</sub> =Me
1-96	—Ph	—Ph	—Ph	—Ph	—н	—н	—н	—н	-н	<del>-</del> н	R <sub>32</sub> =Me R <sub>36</sub> =Me	R <sub>43</sub> =Me R <sub>47</sub> =Me
2]							【表	11]				

[0053]

【表12】

			23									24	
_	No.	Ar <sub>1</sub>	Ar <sub>2</sub>	Ar <sub>3</sub>	Ar <sub>4</sub>	R <sub>13</sub>	R <sub>14</sub>	R <sub>15</sub>	R <sub>23</sub>	A <sub>24</sub>	R <sub>25</sub>	R <sub>32-37</sub>	R <sub>42-47</sub>
	1-97	-St	-н	-St	—н	-н	-н						
	1-98	-St	-н	—St	-н	—Ph	—н	—н	<b>∽</b> Ph	-н	-н	-н	-н
	1-99	-St	-н	—St	—н	—н	—Ph	—н	~н	—Ph	—Ph	-н	-н
	1-100	-St	-н	—St	—н	—н	—н	-Ph	-н	—н	—н	-н	-н
	1-101	-St	-St	—St	—St	-н	-н	-н	-н	~н	-н	-н	-н
	1-102	-St	—St	-St	-St	-Ph	-н	-н	—Ph	-н	-н	-н	-н
	1-103	-St	-St	-St	-St	—н	—Ph	—н	—н	—Ph	-н	-н	-н
	1-104	-St	—St	—St	-St	-н	—н	—Ph	-н	-н	—Ph	-н	~н
	1-105	-St	—н	-St	—н	-н	-st	н	—н	-н	-St	-н	—н
	1-106	-St	-st	-St	-St	-н	-St	-н	—н	-St	-н	-н	-н
	1-107	-PS	-н	-PS	-н	-н	—н	-н	-н	-н	-н	-н	-н
	1-108	-PS	-PS	-PS	-PS	-н	-н	-н	<del>~</del> H	-н	-н	-н	-н
	1-109	-PS	—н	-PS	~н	н	—Ph	—н	—н	—Ph	—н	-н	-н
	1-110	-ps	-н	-ps	-н	-н	-н	-н	—н	-н	—н	—н	~н
	1-111	-DS	-DS	-ps	-DS	н	-н	-н	—н	-н	—н	-н	-н
	1-112	-DS	-н	-ps	-н	—н	—Ph	—н	—н	Ph	—н	—н	-н
									1				

[0054]

【表13】

[0055]

30 【表14】

	25							26
R42-47	Ŧ	Ŧ	Ŧ	Ŧ	Ŧ	Ī	Ŧ	Ŧ
R32-37	<b>+</b>	Ŧ	Ŧ	Ŧ	Ŧ	Ŧ	Ŧ	Ŧ
R <sub>25</sub>	Ŧ	Ŧ	Ŧ	Ŧ	Ŧ	Ŧ	Ŧ	Ŧ
R <sub>24</sub>	Ŧ	Į Į	Ŧ	Ŧ	Ŧ	Ŧ	Į.	Ŧ
R <sub>23</sub>	Ŧ	Ŧ	Ŧ	Ŧ	Ŧ	Ŧ	Ŧ	Ŧ
A <sub>15</sub>	Ŧ	Ŧ	Ŧ	Ŧ	Ŧ	Ī	Ŧ	Ŧ
Щ 4	Ŧ	Ŧ	Ŧ	Ŧ	Ŧ	Ŧ	Ē	Ŧ
R <sub>13</sub>	Ŧ	Ŧ	Ť	Ŧ	Ŧ	Ŧ	Ŧ	Ŧ
Ar4	Ŧ	-P	-CH3	- p-Bph	-p-Bph	Ŧ	Ŧ	
Ara								
Ar2	Ŧ	H H	년 이	Ho-Bph	-p-Bph	Ŧ	Ŧ	
Ar <sub>1</sub>		1-11-5						
Š O	1-113	1-114	1-115	1.116	1-117.	1-118	1-119	1-120

【0056】 【表15】

28

[0057]	ſ	0	0	5	7	1
--------	---	---	---	---	---	---

•	21							28
_	1				【表 1	6]		
R42-47	Ŧ	Ť	Ŧ	Ŧ	Ī,	Ŧ	Ŧ	Ŧ
R <sub>32-37</sub>	Ŧ	Ŧ	Ŧ	Ŧ	Ŧ	ĭ	Ŧ	Ŧ
H <sub>25</sub>	Ŧ	Ŧ	Ŧ	Ŧ	Ī	Ŧ	Ŧ	Ŧ
H <sub>24</sub>	Ŧ	Ŧ	Ŧ	Ŧ	Ŧ	Ŧ	<u> </u>	Ŧ
R <sub>23</sub>	Ŧ	Ŧ	Ŧ	Ŧ	Ŧ	Ŧ	Ŧ	Ŧ
A <sub>15</sub>	Ŧ	Ŧ	Ŧ	Ŧ	Ŧ	Ŧ	Ŧ	Ŧ
R 14	Ŧ	Ŧ	Ŧ	Ŧ	Ŧ	Ŧ	년	Ŧ
R <sub>13</sub>	Ŧ	Ŧ	Ŧ	Ŧ	Ŧ	Ŧ	Ŧ	Ŧ
Ara	Ŧ	Į g	l CH	-p-Bph	— p-8ph	Ŧ	Ŧ	\$ \$ \$
Ar <sub>3</sub>	S) OH3	S CH <sub>3</sub>	S CH <sub>3</sub>	to S	S CH3	How the second s	\$ #5 \S	S CH3
Ar <sub>2</sub>	Ŧ	£	-CH <sub>3</sub>	-p-Bph	- P-8ph	Ŧ	Ŧ	S CH <sub>3</sub>
Ar <sub>1</sub>	S CH3	S CH3	S CH3	SON	1-125 S CH <sub>3</sub>	S	) s	S CH <sub>3</sub>
No.	1-121	1.122	1-123	1-124	1.125	1.126	1.127	1-128

【0058】 【表17】

【0059】 【表18】

	R <sub>67</sub> I	P <sub>66</sub>						
No.	Ar <sub>1</sub>	Ar <sub>2</sub>	Ar <sub>3</sub>	Ar <sub>4</sub>	Ar <sub>5</sub>	Ar <sub>6</sub>	Ar <sub>7</sub>	Ar <sub>8</sub>
2-1	—Ph	—н	—Ph	—н	Ph	—н	—Ph	—н
2-2	Ph	—Ph	Ph	—Ph	—Ph	—Ph	-Ph	—Ph
2-3	—Ph	—н	—Ph	-н	-Ph	-н	—Ph	—н
2-4	Ph	Ph	Ph	—Ph	—Ph	—Ph	—Ph	—Ph
2-5	—Ph	-н	—Ph	—н	—Ph	—н	—Ph	—н
2-6	—Ph	—н	—Ph	—н	Ph	-н	—Ph	—н
2-7	—Ph	-н	Ph	—н	Ph	—н	- Ph	—н
2-8	-Ph	<b>-</b> СН <sub>3</sub>	—Ph	—cн <sub>3</sub>	—Ph	-сн <sub>3</sub>	—Ph	—CH <sub>3</sub>
2-9	—Ph	—н	—Ph	<del>-</del> H	—Ph	—н	—Ph	<b>-</b> -H
2-10	—Ph	-н	—Ph	—н	Ph	-н	—Ph	—н
2-11	—р-Врһ	—н	—p-Bph	—н	-p-Bph	-н	—p-Bph	—н
2-12	—p-Bph	—p-Bph	—p-Bph	—p-Bph	—p-Bph	—p-Bph	—р-Врһ	p-Bph
2-13	p-Bph	—н	p-Bph	-н	—р-Врһ	-н	—p-Bph	—Н
2-14	—p-Bph	—p-Bph	—p-Bph	—p-Bph	p-Bph	—р-Врһ	—p-Bph	—p-Bph
2-15	-p-Bph	<del></del> н	—р-Врһ	-н	—p-Bph	-н	—р-Врһ	—н
2-16	—p-Bph	—н	—р-Врһ	-н	—p-Врh	-H	—p-Bph	—н
2-17	—m-Bph	—н	—m-Bph	—н	-m-Bph	-н	-m-Bph	-н
2-18	—m-Bph	-m-Bph	—m-Bph	-m-Bph	-m-Bph	-m-Bph	-m-Bph	-m-Bph
2-19	o-Bph	—н	—o-Bph	—н	o-Bph	—н	—o-Врh	-н
2-20	—o-Bph	—o-Bph	-o-Bph	-o-Bph	-o-Bph	-o-Bph	—o-Врh	— o-Врh

【0060】 【表19】

【0061】 【表20】

表18のつづき

			-											
No.	R <sub>13</sub>	R <sub>14</sub>	R <sub>15</sub>	R <sub>23</sub>	R <sub>24</sub>	R <sub>25</sub>	R <sub>33</sub>	R <sub>34</sub>	R <sub>35</sub>	R <sub>43</sub>	R <sub>44</sub>	R <sub>45</sub>	R <sub>56-57</sub>	R <sub>66-67</sub>
2-1	-н	-н	-н	н	-н	-н	-н	-н	-н	-н	<del>-</del> н	—н	—н	-н
2-2	-н	-н	-н	-н	—н	-н	-н	—н	-н	-н	—н	-н	-н	-н
2-3	-н	—Ph	-н	-н	—Ph	—н	-н	—Ph	-н	-н	-Ph	—н	—н	-н
2-4	-н	—Ph	-н	~н	—Ph	-н	-н	—Ph	-н	-н	-Ph	—н	~н	-н
2-5	—н	-н	—Ph	-н	-н	—Ph	-н	-н	—Ph	-н	-н	—Ph	-н	-н
2-6	Ph	-н	-н	-Ph	-н	-н	—Ph	—н	-н	—Ph	-н	-н	-н	-н
2-7	-н	—сн <sub>з</sub>	-н	-н	-снз	-н	-н	-снз	-н	-н	−сн <sub>з</sub>	—н	—н	-н
2-8	-н	-н	~н	. —н	-н	-н	-н	-н	-н	-н	—н	-н	—н	-н
2-9	-н	-н	-н	-н	—н	-н	—н	-н	-н	-н	-н	-н	R <sub>56</sub> =Ph	R <sub>66</sub> =Ph
2-10	н	-н	<del>-</del> н	-н	—н	-н	—н	-н	—н	—н	—н	—н	R <sub>56</sub> =Ph R <sub>57</sub> =Ph	R <sub>66</sub> ≖Ph R <sub>67</sub> =Ph
2-11	—н	-н	-н	-н	-н	—н	—н	-н	-н	-н	-н	<del>-</del> н	<b>−</b> H	<b>-</b> н
2-12	-н	-н	-н	-н	-н	—н	-н	—н	-н	-н	—н	-н	—н	—н
2-13	—н	—Ph	-н	-н	—Ph	-н	—н	—Ph	-н	-н	-Ph	-н	—н	-н
2-14	-н	—Ph	-н	-н	-Ph	-н	-н	Ph	-н	-н	-Ph	-н	-н	-н
2-15	—н	-н	-Ph	-н	-н	-Ph	-н	-н	—Ph	-н	-н	—Ph	—н	<b>-</b> H
2-16	—Ph	-н	-н	—Ph	-н	-н	~Ph	-н	-н	Ph	-н	—н	-н	-н
2-17	—н	-н	—н	-н	-н	-н	<b>−</b> H	-н	—н	-н	-н	-н	н	-н
2-18	—н	—н	-н	н	-н	-н	-н	-н						
2-19	-н	-н	-н	-н	-н	-н	-н	-н	-н	-н	н	-н	-н	-н
2-20	—н	-н	-н	-н	-н	—н	—н	-н	—н	-н	-н	-н	—н	—н

[0062]

【表21】

【0063】 【表22】

\$ A33 Ar<sub>7</sub>  $A_{\Gamma 6}$ Ą Ą

【0065 10【表24】

			37									38	
N	o	Ar <sub>1</sub>	Ar <sub>2</sub>	Ar <sub>3</sub>	Ar <sub>4</sub>	R <sub>13</sub>	R <sub>14</sub>	R <sub>15</sub>	R <sub>23</sub>	R <sub>24</sub>	R <sub>25</sub>	R <sub>32-37</sub>	R <sub>42-47</sub>
3-1	_	Ph	-н	—Ph	—н	—н	—н	-н	-н	—н	—н	-н	—н
3-2	· –	Ph	-н	—Ph	—н	-Ph	—н	—н	—Ph	—н	—н	—н	-н
3-3	. –	-Ph	-н	—Ph	—н	-н	—Ph	-н	-н	<b>−</b> Ph	—н	—н	-н
3-4	-	·Ph	-н	—Ph	—н	-н	—н	—Ph	-н	—н	—Ph	<del>-</del> н	-н
3-5	-	Ph	-н	Ph	—н	—Me	—н	—н	-Me	—н	-н	—н	—н
3-6	-	Ph	-н	Ph	-н	-н	—Me	-н	—н	-ме	-н	<del>-</del> н	-н
3-7	_	·Ph	-н	—Ph	—н	-н	—н	-Ме	-н	~н	—Ме	н	-н
3-8	-	Ph	—н	—Ph	—н	-н	-OPh	—н	—н	-OPh	-н	—н	-н
3-9	_	Ph	-н	—Ph	—н	-н	-OMe	-н	—н	<b>—</b> ОМе	-н	<b>-</b> H	~н
3-1	o —	•Ph	н	—Ph	—н	—н —	-€}-Me	-н -	<b>⟨</b> }~	Me −H	-н	—н	-н
3-1	1 —	-Ph	-н	—Ph	н	-н	—p-Bph	—н	н	—p-Bph	—н	-н	-н
3-1	2 —	·Ph	-н	—Ph	—н	—н	-m-Bph	—н	—н	-m-Bph	—н	-н	-н
3-1	з —	Ph	-н	—Ph	-н	-н	-o-Bph	—н	—н	-o-Bph	—н	-н	-н
3-1	4 —	Ph	-н	—Ph	-н	-н	-NPh <sub>2</sub>	—н	—н	-NPh <sub>2</sub>	—н	-н	—н
3-1	5 —	Ph	-н	—Ph	-н	-н	—N(Toly);	₂ —н	—н	-N(Toly)	<sub>2</sub> —H	—н	-н
3-1	6 <b>—</b>									<b>~</b> ©~√@			—н
3-1	7 —	Ph	-н	<b>−</b> Ph	-н	-н `		<b>)</b> —н	—н		<b>ў</b> —н	<del>-</del> н	—н

【0066】 【表25】

【0067】 【表26】

		39									40	
No.	Ar <sub>1</sub>	Ar <sub>2</sub>	Ar <sub>3</sub>	Ar <sub>4</sub>	R <sub>13</sub>	R <sub>14</sub>	R <sub>15</sub>	R <sub>23</sub>	R <sub>24</sub>	R <sub>25</sub>	R <sub>32-37</sub>	R <sub>42-47</sub>
4-1	Ph	-н	—Ph	—н	—н	-н	-н	-н	—н	—н	—н	-н
4-2	—Ph	-н	—Ph	—н	Ph	—н	<del>-</del> н	—Ph	<del></del> н	-н	-н	-н
4-3	Ph	—н	—Ph	—н	—н	—Ph	-н	—н	—Ph	-н	—н	-н
4-4	—Ph	—н	—Ph	-н	—н	—н	—Ph	—н	—н	—Ph	—н	-н
4-5	—Ph	-н	-Ph	-н	—Me	-н	-н	-Ме	<del>-</del> н	-н	<del>-</del> н	<del>-</del> н
4-6	—Ph	-н	—Ph	-н	-н	—Me	-н	—н	Me	—н	—н	-н
4-7	—Ph	-н	—Ph	-н	-н	—н	-Ме	-н	<del>-</del> н	—Ме	—н	-н
4-8	—Ph	-н	—Ph	-н	—н	-OPh	—н	—н	-OPh	-н	—н	-н
4-9	—Ph	—н	—Ph	-н	—н	-ОМе	—н	—н	-ОМе	-н	<del></del> н	-н
4-10	—Ph	—н	Ph	-н	—н-	-{-}Me	—н	—н	<b>─</b> ∰Me	-н	—н	-н
4-11	Ph	—н	Ph	-н	—н	<b>—</b> р-Врһ	—н	—н	—p-Bph	-н	—н	-н
4-12	—Ph	-н	—Ph	-н	—н	-m-8ph	—н	-н	—m-Bph	—н	<del>-</del> н	-н
4-13	—Ph	<b>-</b> н	Ph	-н	Н	-o-Bph	—н	—н	-o-Bph	-н	—н	-н
4-14	—Ph	—н	—Ph	-н	—н	-NPh <sub>2</sub>	—н	—н	-NPh <sub>2</sub>	—н	—н	-н
4-15	—Ph	-н	Ph	-н	—н	-N(Toly)2	-н	—н	-N(Toly)	<sub>2</sub> —H	-н	-н
4-16	Ph	-н	—Ph	—н	—н	<b>₽</b>	<b>)</b> —н	—н -	<b>₽</b>	<b>»</b> —н	—н	-н
4-17	—Ph	-н	-Ph	—н	—н		<b>)</b> —н	-н '		<b>)</b> —н	н	—н

[
$$0068$$
]  
[ $827$ ]  
 $R_{24}$   $Ar_{3}$   $R_{32}$   $R_{33}$   $R_{42}$   $Ar_{1}$   $R_{13}$   $R_{14}$   $R_{15}$   $R_{15}$   $R_{37}$   $R_{36}$   $R_{36}$   $R_{36}$   $R_{47}$   $R_{46}$   $R_{47}$ 

【0069】 【表28】

			41									42	
_	No.	Ar <sub>1</sub>	Ar <sub>2</sub>	Ar <sub>3</sub>	Ar <sub>4</sub>	R <sub>13</sub>	R <sub>14</sub>	R <sub>15</sub>	R <sub>23</sub>	R <sub>24</sub>		R <sub>32-37</sub>	R <sub>42-47</sub>
	5-1	—Ph	—н	—Ph	-н	-н	—н	—н	-н	—н	-н	-н	—н
	5-2	—Ph	-н	—Ph	-н	—Ph	—н	—н	Ph	—н	-н	-н	-н
	5-3	-Ph	—н	—Ph	-н	—н	—Ph	—н	—н	—Ph	-н	—н	-н
	5-4	—Ph	—н	—Ph	-н	-н	—н	—Ph	—н	н	—Ph	—н	—н
	5-5	-Ph	-н	—Ph	-н	-Ме	—н	—н	-Ме	—н	-н	-н	—н
	5-6	—Ph	-н	—Ph	-н	-н	—Мe	-н	-н	Мө	-н	-н	—н
	5-7	-Ph	—н	—Ph	-н	-н	—н	—Ме	—н	<del>-</del> н	-Me	-н	-н
	5-8	—Ph	—н	—Ph	-н	—н	-OPh	—н	-н	-OPh	<del>-</del> н	-н	-н
	5-9	—Ph	-н	—Ph	-н	-н	-ОМе	—н	-н	-OMe	-н	—н	-н
	5-10	—Ph	-н	-Ph	-н	-н -	-(T)-Me	—н	-н-	-€¯}-Me	-н	-н	-н
	5-11	-Ph	-н	—Ph	-н	-н	-p-Bph	—н	-н	—p-Врh	—н	-н	-н
	5-12	-Ph	-н	—Ph	-н	-н	-m-Bph	<del>-</del> н	-н	—m-Bph	—н	-н	—н
	5-13	—Ph	—н	—Ph	-н	-н	-o-Bph	-н	-н	-o-Bph	—н	-н	-н
	5-14	—Ph	—н	—Ph	-н	-н	-NPh <sub>2</sub>	—н	-н	-NPh <sub>2</sub>	-н	-н	<b>-</b> н
	5-15	—Ph	-н	—Ph	-н	-н	—N(Toly);	≥ <del></del> H	-н	—N(Toly	) <sub>2</sub> —H	-н	-н
	5-16	—Ph	-н	—Ph	-н					-@~@			
	5-17	—Ph	—н	-Ph	-н	—н	~@ <sub>}~@</sub>	<b>∂</b> −⊦	н —н		<u>.</u> —н	—н	—н
							_			_			

[0070]

[0071]

40 【表30】

		43									44	
No.	Ar <sub>1</sub>	Ar <sub>2</sub>	Ar <sub>3</sub>	Ar <sub>4</sub>	R <sub>13</sub>	R <sub>14</sub>	R <sub>15</sub>	R <sub>23</sub>	R <sub>24</sub>	R <sub>25</sub>	R <sub>32-37</sub>	R <sub>42-47</sub>
6-1	—Ph	-н	Ph	—н	-н	—н	—н	-н	-н	—н	—н	—н
6-2	—Ph	-н	-Ph	—н	-Ph	—н	—н	—Ph	-н	—н	—н	~н
6-3	-Ph	-н	—Ph	—н	-н	—Ph	-н	—н	—Ph	<b>-</b> H	-н	—н
6-4	—Ph	-н	—Ph	—н	—н	-н	-Ph	—н	—н	—Ph	-н	-н
6-5	—Ph	-н	—Ph	—н	—Ме	—н	—н	—Мe	—н	н	-н	—н
6-6	—Ph	-н	—Ph	—н	<del></del> н	-Me	—н	-н	—Me	-н	—н	—н
6-7	—Ph	—н	—Ph	—н	—н	—н	-Me	—н	н	−Me	—н	н
6-8	—Ph	—н	—Ph	—н	<b>−</b> н	-OPh	-н	—н	-OPh	—н	—н	<del>-</del> н
6-9	—Ph	-н	—Ph		—н			—н	-ОМе	<b></b> H	Н	—н
6-10	—Ph	-н	—Ph	~н	—н -	-€¯}-Me	-н	—н .	-√∑-Me	—н	н	<del>-</del> н
6-11	—Ph	-н	—Ph	—н	-н ·	— p-Bph	—н	—н	—p-Bph	н	—н	—н
6-12	—Ph	—н	Ph	<del>-</del> н	н	-m-Bph	-н	-н	-m-Bph	—н	—н	—н
6-13	—Ph	—н	<b>→</b> Ph	—н	—н	o-Bph	-н	—н	—o-Bph	—н	—н	—н
6-14	—Ph	—н	—Ph	—н	—н	-NPh <sub>2</sub>	н	н	-NPh <sub>2</sub>	-н	—н	—н
6-15	—Ph	—н	—Ph				-		-N(Toly)2		—н	—н
6-16	—Ph	—н	Ph								-н	
6-17	—Ph	-н	—Ph	—н	—н		<b>⊡&gt; —</b> н	—н		> —н	—н	—н

【0072】本発明のフェニルアントラセン誘導体であ る有機EL素子用化合物(以下、「本発明の化合物」と もいう。)は、(1)ハロゲン化アリールアントラセン 化合物を、Ni (cod) 2 [cod:1, 5-シクロ オクタジエン〕でカップリング、もしくはジハロゲン化 アリールをグリニャール化しNiCl2 (dppe) l2 (dppp) [dppp:ジフェニルフォスフィノ プロパン〕、などのNi錯体などを用いてクロスカップ リングする方法、(2) ボロン酸アリールとハロゲン化 アリールアントラセン化合物を、Pd錯体等を用いてク ロスカプリングする方法、(3) アントラキノン、ベン ゾキノン、フェニルアンスロンもしくはビアントロンと グリニャール化したアリールもしくはリチオ化したアリ ールとの反応および還元によりクロスカップリングする 方法、等により得られる。

析、質量分析、赤外吸収スペクトル、「Hまたは」。C核 磁気共鳴吸収 (NMR) スペクトルなどによって同定す ることができる。

【0074】本発明のフェニルアントラセン誘導体は、 400~2000程度、さらには400~1000程度 の分子量をもち、200~500℃の高融点を有し、8 [dppe:ジフェニルフォスフィノエタン]、NiC 40 0~250℃、さらには100~250℃、よりさらに は130~250℃、特に150~250℃のガラス転 移温度(Tg)を示す。従って、通常の真空蒸着等によ り透明で室温以上でも安定なアモルファス状態の平滑で 良好な膜を形成し、しかもその良好な膜の状態が長期間 に渡って維持される。

【0075】本発明の有機EL素子(以下、「EL素 子」ともいう。) は、少なくとも1層の有機化合物層を 有し、少なくとも1層の有機化合物層が本発明の化合物 を含有する。本発明の有機EL素子の構成例を図1に示 【0073】このようにして得られた化合物は、元素分 50 す。同図に示される有機EL素子は、基板1上に、陽極 2、ホール注入輸送層3、発光層4、電子注入輸送層 5、陰極6を順次有する。

【0076】発光層は、ホールおよび電子の注入機能、 それらの輸送機能、ホールと電子の再結合により励起子 を生成させる機能を有する。ホール注入輸送層は、陽極 からのホールの注入を容易にする機能、ホールを輸送す る機能および電子の輸送を妨げる機能を有し、電子注入 輸送層は、陰極からの電子の注入を容易にする機能、電 子を輸送する機能およびホールの輸送を妨げる機能を有 するものであり、これらの層は、発光層へ注入されるホ 10 ールや電子を増大・閉じ込めさせ、再結合領域を最適化 させ、発光効率を改善する。電子注入輸送層およびホー ル注入輸送層は、発光層に用いる化合物の電子注入、電 子輸送、ホール注入、ホール輸送の各機能の高さを考慮 し、必要に応じて設けられる。例えば、発光層に用いる 化合物のホール注入輸送機能または電子注入輸送機能が 高い場合には、ホール注入輸送層または電子注入輸送層 を設けずに、発光層がホール注入輸送層または電子注入 輸送層を兼ねる構成とすることができる。また、場合に よってはホール注入輸送層および電子注入輸送層のいず 20 れも設けなくてよい。また、ホール注入輸送層および電 子注入輸送層は、それぞれにおいて、注入機能をもつ層 と輸送機能をもつ層とを別個に設けてもよい。

【0077】本発明の化合物は、比較的ニュートラルな 化合物なので発光層に用いることが好ましいが、ホール 注入輸送層や電子注入輸送層にも適用可能である。

【0078】また、組み合わせる発光層や電子注入輸送 層やホール注入輸送層のキャリア移動度やキャリア密度 (イオン化ポテンシャル・電子親和力により決まる)を 考慮しながら、膜厚をコントロールすることで、再結合 領域・発光領域を自由に設計することが可能であり、発 光色の設計や、両電極の干渉効果による発光輝度・発光 スペクトルの制御や、発光の空間分布の制御を可能にで きる。

【0079】本発明の化合物を発光層に用いる場合につ いて説明する。発光層には本発明の化合物のほか、他の 蛍光性物質を用いてもよく、他の蛍光性物質としては、 例えば、特開昭63-264692号公報に開示されて いるような化合物、例えば、キナクリドン、スチリル系 色素、ルプレン等の芳香族炭化水素、ジフェニルイソベ 40 ンゾフラン等または3級アミン等の化合物から選択され る少なくとも1種が挙げられる。このような蛍光性物質 の含有量は、本発明の化合物の10モル%以下とするこ とが好ましい。このような化合物を適宜選択して添加す ることにより、発光光を長波長側にシフトすることがで きる。

【0080】本発明の化合物を発光層に用いる場合、ホ ール注入輸送層および電子注入輸送層には、通常の有機 EL素子に用いられている各種有機化合物、例えば、特 開昭63-295695号公報、特開平2-19169 50 入輸送性化合物が5:95~95:5であることが好ま

4号公報、特開平3-792号公報等に記載されている 各種有機化合物を用いることができる。例えば、ホール 注入輸送層には、芳香族三級アミン、ヒドラゾン誘導 体、カルバゾール誘導体、トリアゾール誘導体、イミダ ソール誘導体等を用いることができ、また、電子注入輸 送層には、アルミキノリノールなどの有機金属錯体誘導 体、オキサジアゾール誘導体、ピリジン誘導体、ピリミ ジン誘導体、キノリン誘導体、キノキサリン誘導体、ジ フェニルキノン誘導体、ペリレン誘導体、フルオレン誘 導体等を用いることができる。

46

【0081】ホール注入輸送層をホール注入層とホール 輸送層とに分けて設層する場合は、ホール注入輸送層用 の化合物のなかから好ましい組合せを選択して用いるこ とができる。このとき、陽極(ITO等)側からイオン 化ポテンシャルの小さい化合物の層の順に積層すること が好ましい。また陽極表面には薄膜性の良好な化合物を 用いることが好ましい。このような積層順については、 ホール注入輸送層を2層以上設けるときも同様である。 このような積層順とすることによって、駆動電圧が低下 し、電流リークの発生やダークスポットの発生・成長を 防ぐことができる。また、素子化する場合、蒸着を用い ているので1~10nm程度の薄い膜も、均一かつピンホ ールフリーとすることができるため、ホール注入層にイ オン化ポテンシャルが小さく、可視部に吸収をもつよう な化合物を用いても、発光色の色調変化や再吸収による 効率の低下を防ぐことができる。

【0082】電子注入輸送層を電子注入層と電子輸送層 とに分けて設層する場合は、電子注入輸送層用の化合物 のなかから好ましい組合せを選択して用いることができ る。このとき、陰極側から電子親和力の値の大きい化合 物の層の順に積層することが好ましい。このような積層 順については電子注入輸送層を2層以上設けるときも同 様である。

【0083】なお、本発明では、発光層を電子注入輸送 性化合物とホール注入輸送性化合物との混合層とするこ とも好ましい。そして、このような混合層に本発明の化 合物を含有させる。本発明の化合物は、通常、蛍光性物 質として含有されるため、より具体的には、本発明の化 合物が電子注入輸送性化合物であるとき、他のホール注 入輸送性化合物をさらに添加することが好ましく、本発 明の化合物がホール注入輸送性化合物であるときは、他 の電子注入輸送性化合物をさらに添加することが好まし い。この場合、特に好ましい組み合わせとしては、電子 注入輸送性の化合物に本発明の化合物を用い、ホール注 入輸送性の化合物にアミン系、またはスチリルアミン系 の化合物を用いる。上記の混合層における電子注入輸送 性化合物とホール注入輸送性化合物との混合比は、用い る材料のキャリア移動度とキャリア濃度に依存するが、 一般的には重量比で、電子注入輸送性化合物:ホール注

しく、特には $10:90\sim90:10$ であることが好ましい。また、さらには $20:80\sim20:80$ であることが好ましい。また、混合層の厚みは分子層1層から有機化合物の膜厚未満とすることが好ましい。

【0084】この混合に供する電子注入輸送性化合物は、上記の電子注入輸送層用の化合物のなかから、またホール注入輸送性化合物は、上記のホール注入輸送層用の化合物のなかから選択して用いることができる。また、場合によっては本発明の化合物から選択して用いてもよい。さらに、混合層において、電子注入輸送性化合 10物、ホール注入輸送性化合物は各々1種のみ用いても2種以上を併用してもよい。また、混合層には発光強度を高めるために、本発明の化合物や他の蛍光性物質をドープして用いてもよい。

【0085】さらに、他の電子注入輸送性化合物および 他のホール注入輸送性化合物の混合層とし、このような 混合層に本発明の化合物をドープして用いてもよい。

【0086】このような混合層をEL素子に適用することによって、素子の安定性が向上する。

【0087】本発明の化合物は電子注入輸送層に用いる 20 ことも好ましい。この場合、発光層に用いる蛍光性物質は、本発明の化合物より長波長もしくは同程度の波長の蛍光をもつものを用いることが好ましい。例えば、上記した、発光層において本発明の化合物と併用できる蛍光性物質のなかから選択して用いることができる。また、本発明の化合物は、このような構成において、さらに発光層にも用いることができる。また、本発明の化合物は電子注入輸送層を兼ねた発光層にも用いることができる。また、電子注入輸送層とする場合、電子キャリア密度を向上させるため、Li, Na, K, Cs等の仕事関 30 数の小さな金属、金属ハロゲン化物もしくは金属酸化物等を電極界面、もしくは界面近傍にドープしてもよい。

【0088】本発明の化合物はホール注入輸送層に用いることができる。

【0089】本発明の化合物をホール注入輸送層に用いる場合、発光層に用いる蛍光性物質は、本発明の化合物より長波長の蛍光をもつものから選択すればよく、例えば、上記した、発光層において本発明の化合物と併用される蛍光性物質の1種以上から適宜選択すればよい。このような場合、発光層にも本発明の化合物を用いること 40ができる。また、ホール注入輸送層とする場合、ホールキャリア密度を向上させるために、4級アミン等のホール発生ドーバントを電極界面、もしくは界面近傍にドープしてもよい。

【0090】なお、上記において、他の蛍光性物質を主に発光層に用いる場合、本発明の化合物を蛍光性物質として10モル%以下添加して併用してもよい。

【0091】発光層の厚さ、ホール注入輸送層の厚さおよび電子注入輸送層の厚さは特に限定されず、形成方法によっても異なるが、通常、5~1000m程度、特に 50

8~200mとすることが好ましい。

【0092】ホール注入輸送層の厚さおよび電子注入輸送層の厚さは、再結合・発光領域の設計によるが、発光層の厚さと同程度もしくは1/10~10倍程度とすればよい。電子もしくはホールの、各々の注入層と輸送層を分ける場合は、注入層は1nm以上、輸送層は20nm以上とするのが好ましい。このときの注入層、輸送層の厚さの上限は、通常、注入層で100nm程度、輸送層で1000m程度である。

【0093】陰極には、仕事関数の小さい材料、例えば、Li、Na、Mg、Al、Ag、In あるいはこれらの1種以上を含む合金を用いることが好ましい。また、陰極は結晶粒が細かいことが好ましく、特に、アモルファス状態であることが好ましい。陰極の厚さは10~1000m程度とすることが好ましい。

【0094】EL素子を面発光させるためには、少なくとも一方の電極が透明ないし半透明である必要があり、上記したように陰極の材料には制限があるので、好ましくは発光光の透過率が80%以上となるように陽極の材料および厚さを決定することが好ましい。具体的には、例えば、ITO、SnO2、Ni、Au、Pt、Pd、ドーパントをドープしたポリピロールなどを陽極に用いることが好ましい。また、陽極の厚さは10~500mm程度とすることが好ましい。また、素子の信頼性を向上するために駆動電圧が低いことが必要であるが、好ましいものとして10~30Ω/□程度ないし10Ω/□以下(通常5~10Ω/□)のITOが挙げられる。

【0095】基板材料に特に制限はないが、図示例では 基板側から発光光を取り出すため、ガラスや樹脂等の透 明ないし半透明材料を用いる。また、基板に色フィルタ 一膜や誘電体反射膜を用いて発光色をコントロールして もよい。

【0096】なお、基板に不透明な材料を用いる場合には、図1に示される積層順序を逆にしてもよい。

【0097】次に、本発明の有機EL素子の製造方法を 説明する。陰極および陽極は、蒸着法やスパッタ法等の 気相成長法により形成することが好ましい。

【0098】ホール注入輸送層、発光層および電子注入輸送層の形成には、均質な薄膜が形成できることから真空蒸着法を用いることが好ましい。真空蒸着法を用いた場合、アモルファス状態または結晶粒径が $0.2\mu m$ 以下(通常 $0.01\mu m$ 以上)の均質な薄膜が得られる。結晶粒径が $0.2\mu m$ を超えていると、不均一な発光となり、素子の駆動電圧を高くしなければならなくなり、電荷の注入効率も著しく低下する。

【0099】真空蒸着の条件は特に限定されないが、10<sup>-5</sup> Torr以下の真空度とし、蒸着速度は0.1~1 mm/sec 程度とすることが好ましい。また、真空中で連続して各層を形成することが好ましい。真空中で連続して形成すれば、各層の界面に不純物が吸着することを防げ

49

るため、高特性が得られる。また、素子の駆動電圧を低くすることができる。

【0100】これら各層の形成に真空蒸着法を用いる場合において、1層に複数の化合物を含有させる場合、化合物を入れた各ポートを個別に温度制御して水晶振動子膜厚計でモニターしながら共蒸着することが好ましい。

【0101】本発明のEL素子は、通常、直流駆動型の EL素子として用いられるが、交流駆動またはパルス駆動することもできる。印加電圧は、通常、2~20V程度とされる。

### [0102]

【実施例】以下、本発明の具体的実施例を比較例ととも に示し、本発明をさらに詳細に説明する。

#### <合成例1>

化合物 1 (10,10'-ビス (2-ビフェニルイル)-9,9'-ビアンスリル) の合成

2ープロモビフェニル7.8g、ジエチルエーテル50mlとトルエン50mlを混合し、これに1.6Mプチルリチウムのヘキサン溶液20.4mlをゆっくり滴下しながら1時間室温で攪拌し、2ーリチオビフェニルを調整した。次に、トルエン150mlとビアンスロン4gの混合物にこのリチオビフェニルをゆっくり滴下し、室温で一昼夜攪拌した。次いで、これに蒸留水100mlを加えさらに1時間攪拌した後、この溶液を濾過し、廬物をトルエン、メタノールで洗浄した。得られた物をテトラヒドロフランとトルエンから再結晶した後、カラム精製し、4.3gの白色固体としてジオール体を得た。

【0103】このジオール体4gとテトラヒドロフラン400mlをフラスコに入れ塩化すず25gと塩酸25mlを混合した溶液をゆっくり滴下した。このフラスコを7300度のオイルバスで2時間加熱した後冷却し、200mlのトルエンを加え、蒸留水及び炭酸水素ナトリウムで洗浄した。硫酸マグネシウムで乾燥した後、カラム精製と再沈を繰り返し、3.7gの淡黄白色固体を得た。この淡黄白色固体3.0gを昇華精製し2.8gの黄白色固体を得た。この目的物(10,10'-ビス(2-ビフェニルイル)-9,9'-ビアンスリル)の構造を下記に示す。

【0104】 【化6】

【0105】この黄白色個体の質量分析およびNMRスペクトル、赤外吸収スペクトルの測定を行ったところ、目的物と矛盾しないことを確認した。また、ガラス転移温度を測定したところ、144度であった。

# 【0106】<合成例2>

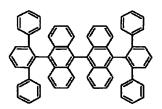
化合物 2 (10,10'-ビス (2,6-ジフェニルフェニル)-9,9'-ビアンスリル) の合成

合成例 1 の 2 ープロモビフェニルの代わりに、1 ープロモー 2, 6 ージフェニルベンゼン 9. 3 g を用いて合成を行い、4. 0 g の目的化合物を得た。この、目的物(10, 10' –ビス(2, 6-ジフェニルフェニル)-9, 9' –ビアンスリル)の構造を下記に示す。

[0107]

【化7】

10



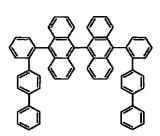
【0108】この化合物の質量分析およびNMRスペクトル、赤外吸収スペクトルの測定を行ったところ、目的物と矛盾しないことを確認した。また、融点は340℃、ガラス転移温度は、166度であった。 H-NMRスペクトルを図2に、 C-NMRスペクトルを図3に、赤外線スペクトルを図4に示す。

# 【0109】<合成例3>

化合物3 (10, 10', -ビス-(2-p-ターフェニルイル) -9, 9', -ビアンスリル) の合成合成例1の2-プロモビフェニルの代わりに、2-プロモーP-ターフェニル9. 3g を用いて合成を行い、4. 0g の目的化合物を得た。この目的物(10, 10', -ビス-(2-p-ターフェニルイル) -9, 9', -ビアンスリル) の構造式を下記に示す。

[0110]

【化8】



40 【0111】この化合物の質量分析およびNMRスペクトル、赤外吸収スペクトルの測定を行ったところ、目的物と矛盾しないことを確認した。また、ガラス転移温度を測定したところ、154度であった。「H-NMRスペクトルを図5に示す。

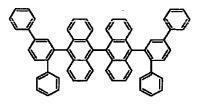
# 【0112】<合成例4>

化合物4(10,10'-ビス-(2,5-フェニルフェニル)-9,9'-ビアンスリル)の合成合成例1の2-ブロモビフェニルの代わりに、1-ブロモー2,5-ジフェニルベンゼン9.3gを用いて合成を行い、4.0gの目的化合物を得た。この目的物(1

0, 10'-ピスー(2, 5-フェニルフェニル)-9,9'ーピアンスリル)の構造式を下記に示す。

# [0113]

【化9】



【0114】この化合物の質量分析およびNMRスペク トル、赤外吸収スペクトルの測定ヲ行ったところ、目的 物と矛盾しないことを確認した。また、ガラス転移温度 を測定したところ、145度であった。 H-NMRス ペクトルを図6に、'\*C-NMRスペクトルを図7に、 赤外線スペクトルを図8に示す。

# 【0115】<合成例5>

化合物5 (10,10'-ビス[-2-(-5-フェニルチエニル-2-イル)フェニル]-9,9'-ビアンスリル)の合成 合成例1の2-ブロモビフェニルの代わりに、2-(-5-フ ェニルチエニル-2-イル) ブロモベンゼン3.5g を用 いて合成を行い、0.9gの目的化合物を得た。得られ た目的物(10,10'-ビス[-2-(-5-フェニルチエニル-2-イル)フェニル]-9.9'-ピアンスリル)の構造を下記に 示す。

[0116] 【化10】

【0117】この黄白色個体の質量分析およびNMRス ペクトル、赤外吸収スペクトルの測定を行ったところ、 目的物と矛盾しないことを確認した。また、ガラス転移 温度を測定したところ、146度であった。 H-NM Rスペクトルを図9に示す。

# 【0118】<合成例6>

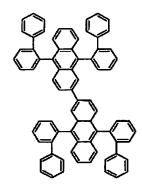
化合物・(9,9',10,10'-テトラキス(-2-ビフェニ ルイル) -2,2'-ビアンスリル) の合成 2-プロモビフェニル11. 4g、ジエチルエーテル5 Omlとトルエン50m1を混合し、これに1. 6Mプチル リチウムのヘキサン溶液30をゆっくり滴下しながら1 時間室温で攪拌し、2-リチオピフェニルを調整した。

次に、トルエン150m1と2-クロロアントラキノン 5. 5gの混合物にこのリチオピフェニルをゆっくり滴 下し、室温で一昼夜攪拌した。次いで、これに蒸留水1 00mlを加えさらに1時間攪拌した後、この溶液を濾過 した後、カラム精製し、9.8gの白色固体としてジオ ール体を得た。

【0119】このジオール体9. 6g とテトラヒドロフ ラン400mlを混合し、これに塩化すず25gと塩酸2 5mlの混合液をゆっくり滴下した。さらに、これを70 度のオイルバスで2時間加熱した後冷却し、200mlの トルエンを加え、蒸留水及び炭酸水素ナトリウムで洗浄 した。硫酸マグネシウムで乾燥した後、カラム精製と再 沈を繰り返し、純白色の2-クロロー9,10-ジフェ 10 ニルアントラセン7.1gを得た。

【0120】次に、2-クロロ-9,10-ジフェニル アントラセン4. 5g、Ni(cod)21. 8g、DMF100m 1、1,5-シクロオクタジエン3ml、2,2'-ビピリ ジン1gを混合し、60度で20時間反応した後、これ をメタノール200m1に加え、さらに2時間攪拌し た。この溶液を濾過し、廬物をメタノール、ヘキサン、 アセトンで洗浄した後、再結晶およびカラム精製を行 い、3g の白色固体を得た。これを昇華精製し、2.8 gの黄白色個体を得た。得られた目的物の構造を下記に 示す。

[0121] 【化11】



【0122】この黄白色個体の質量分析およびNMRス ペクトル、赤外吸収スペクトルの測定を行ったところ、 目的物と矛盾しないことを確認した。また、ガラス転移 温度を測定したところ、166度であった。

【0123】なお、ガラス上に蒸着して放置したところ 半年以上アモルファスの安定な膜を維持した。

【0124】<合成例7>

化合物7 (10,10'-ビス [2-(-5-フェニルチエニル-2-イル)フェニル]-9,9'-ビアンスリル)の合成 乾燥した容器に、2-(5-フェニルチエニルー2-イ ル) プロモベンゼン3.5gと、トルエン50mlとジエ チルエーテル50mlを加えた後、1.6Mのn-プチル リチウムのヘキサン溶液 7. 2mlをゆっくり加え 1 時間 室温で攪拌し、2-(5-フェニルチエニル-2-イ ル) リチオベンゼンを得た。次に、乾燥した別の容器に 10, 10'-ビアンスロン2g とトルエン100mlを し、廬物をメタノールで洗浄した。得られた物を再結晶 50 加えよく撹拌した。この反応液の中に、先に調整した2

- (5-フェニルチエニル-2-イル) リチオベンゼン をゆっくり滴下した。室温で20時間攪拌した後、蒸留 水40mlを加え、生じた沈殿物を濾別した。この沈殿物 を2回洗浄した後、カラム分離を2回行い、再結晶して 2.9gの白色固体としてジオール体を得た。

【0125】次に反応容器に、得られたジオール体2. 9g とテトラヒドロフラン400mlに、塩化すず25g と塩酸40mlを混合した溶液をゆっくり滴下した。この 反応容器を60℃のオイルバスで2時間撹拌した。この 反応溶液に100mlのトルエンを加え、有機層を分離し 10 た後、塩酸と蒸留水で洗浄した後、乾燥した。得られた 固体を、カラム精製2回(吸着剤:シリカゲル、展開溶 媒:トルエン) した後、トルエン/ヘキサン系溶液から 再沈し、黄白色の固体1. 2g を得た。さらに、この黄 白色固体1.2g を昇華精製し0.9g の黄白色固体を 得た。得られた目的物 (10,10'-ビス [2-(-5-フェニル チエニル-2-イル)フェニル]-9,9'-ビアンスリル)の 構造式を下記に示す。

[0126]

【化12】

【0127】この黄白色個体の質量分析およびNMRス ペクトル、赤外吸収スペクトルの測定を行ったところ、 目的物と矛盾しないことを確認した。

【0128】<実施例1>厚さ100mmのITO透明電 極(陽極)を有するガラス基板を、中性洗剤、アセト ン、エタノールを用いて超音波洗浄し、煮沸エタノール 中から引き上げて乾燥した。透明電極表面をUV/0。洗浄 した後、真空蒸着装置の基板ホルダーに固定して、チャ ンバー内を10<sup>-4</sup> Pa以下の減圧状態とした。

【0129】次に、ホール注入層として、減圧状態を保 ったまま、N, N'ージフェニルーN, N'ービス[N-(4-メチルフェニル) - N-フェニル- (4-アミノフェ ニル)]-1,1'-ピフェニル-4,4'-ジアミン を蒸着速度 0. 1 nm/sec で 8 0 nm の 厚 さ に 形成 し た。

【0130】次いで、減圧状態を保ったまま、ホール輸 送層として、N, N'ージフェニルーN, N'ービス (1-ナフチル) -1, 1' -ジフェニル-4, 4' -ジ アミンを蒸着速度 0. 1 nm/sec で 1 5 nm の 厚さに 形成 し た。

【0131】さらに、減圧状態を保ったまま、発光層と して、化合物 1 を蒸着速度 0. 1 nm/sec で 4 0 nmの厚さ に形成した後、電子注入層として、トリス-8-キノリノ ラトアルミニウムを蒸着速度 0. 1 nm/sec で 1 5 nmの厚 50 流したところ、6. OV、1 0 mA/cm² で 4 0 O cd/m²

さに形成した。

【0132】次に、滅圧状態を保ったまま、電子注入電 極としてLi<sub>2</sub>Oを蒸着速度O. O1nm/secで1nmの厚 さに形成した後、配線電極として、Alを蒸着速度2nm /secで200nmの厚さに形成した

【0133】この有機EL素子に電圧を印加して電流を 流したところ、6. 0V、10mA/cm² で200cd/m² の発光(発光極大波長 A max = 420 nm、色度座標(x, y) = (0.10,0.08) が確認された。

【0134】また、この素子に、50mA/cm<sup>2</sup> の一定電 流を流し、連続発光させたところ、初期輝度840cd/m <sup>2</sup> 初期駆動電圧は7. 4V となり、140時間後に輝度 は半減した。このとき駆動電圧上昇は2. 2Vであっ た。

【0135】<実施例2>実施例1において、発光層と して上記合成例の化合物1と下記化6で示す化合物を、 100:3の重量比率で共蒸着する他は同様にして有機 EL素子を得た。

[0136]

【化13】

【0137】この有機EL素子に電圧を印加して電流を 流したところ、5.9V、10mA/cm2 で1200cd/m <sup>2</sup> の発光(発光極大波長 l max = 460 nm、色度座標 (x,y) = (0.17,0.32) が確認された。

【0138】また、この素子に、50mA/cm<sup>2</sup> の一定電 流を流し、連続発光させたところ、初期輝度6500cd /m² 初期駆動電圧は7. 4V となり、400時間後に輝 度は半減した。このとき駆動電圧上昇は2. 2Vであっ

【0139】<実施例3>実施例1において、発光層と して上記合成例の化合物1と、下記化7で示す化合物を 100:3の重量比率で共蒸着する他は同様にして有機 EL素子を得た。

[0140]

【化14】

【0141】この有機EL素子に電圧を印加して電流を

の発光 (発光極大波長 $\lambda$  max = 420 nm、色度座標 (x, y) = (0.10,0.10) が確認された。

【0142】また、この素子に、 $50\,\text{mA/cm}^2$  の一定電流を流し、連続発光させたところ、初期輝度 $2100\,\text{cd}$  / $\text{m}^2$  初期駆動電圧は $7.6\,\text{V}$  となり、 $250\,\text{時間後に輝度は半減した。このとき駆動電圧上昇は<math>2.2\,\text{V}$ であった。

【0143】<比較例1>実施例3において、発光層として化合物1の代わりに10,10'-ビス (2,6'-ジメチルフェニル)-9,9'-ビアンスリルを用いる他は同様にして有機EL素子を得た。

【0144】この有機EL素子に電圧を印加して電流を流したところ、6.5V、 $10mA/cm^2$  で $140cd/m^2$  の発光 (発光極大波長 $\lambda$ max = 460nm、色度座標 (x, y) = (0.10,0.10) が確認された。

【 0 1 4 5 】また、この素子に、5 0 mA/cm² の一定電流を流し、連続発光させたところ、初期輝度 6 5 0 cd/m² 初期駆動電圧は8. 0 V となり、2 0 時間後に輝度は半減した。このとき駆動電圧上昇は3. 0 V であった。

【0146】<比較例2>実施例4において、発光層と 20 して化合物1の代わりに10,10'-ビス(2,6'-ジメチル フェニル)-9,9'-ビアンスリルを用いる他は同様にし て有機EL素子を得た。

【0147】この有機EL素子に電圧を印加して電流を流したところ、6.7V、 $10mA/cm^2$  で $869cd/m^2$ の発光(発光極大波長 $\lambda max = 460nm$ 、色度座標(x, y) = (0.17,0.32) が確認された。

【0148】また、この素子に、50mA/cm<sup>2</sup> の一定電流を流し、連続発光させたところ、初期輝度4900cd/m<sup>2</sup> 初期駆動電圧は7.9Vとなり、50時間後に輝度 30は半減した。このとき駆動電圧上昇は3.2Vであった。

# [0149]

【発明の効果】本発明の有機EL素子用化合物は、結晶性が低く、アモルファス状態の良好な膜を形成することができるので、有機EL素子用化合物、特に青色発光材

料や電子注入輸送材料として用いることができる。

【0150】また、本発明の有機EL素子用化合物を用いた本発明の有機EL素子は電流リークがなく、非発光部分(ダークスポット)の発生・成長がなく、膜中の結晶化が抑制されるので連続発光の信頼性の高い素子となる。特に発光層に用いた場合1万cd/m²以上の高輝度の青色発光が可能となるだけでなく、十分な発光効率、長寿命を有する。

#### 【図面の簡単な説明】

0 【図1】本発明のEL素子の構成例を示す側面図であ ス

【図2】本発明の合成例2の化合物の「H-NMRのスペクトルを示した図である。

【図3】本発明の合成例2の化合物の「C-NMRのスペクトルを示した図である。

【図4】本発明の合成例2の化合物の赤外線スペクトルを示した図である。

【図5】本発明の合成例3の化合物の「H-NMRのスペクトルを示した図である。

0 【図6】本発明の合成例4の化合物の「H-NMRのスペクトルを示した図である。

【図7】本発明の合成例4の化合物の「C-NMRのスペクトルを示した図である。

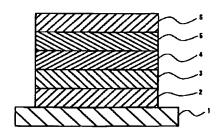
【図8】本発明の合成例4の化合物の赤外線スペクトルを示した図である。

【図9】本発明の合成例5の化合物の「H-NMRのスペクトルを示した図である。

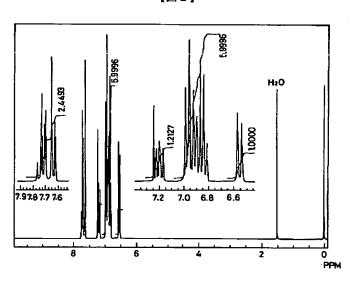
# 【符号の説明】

- 1 有機EL素子
- 0 2 基板
- 3 陽極
  - 4 ホール注入輸送層
  - 5 発光層
  - 6 電子注入輸送層
- 7 陰極

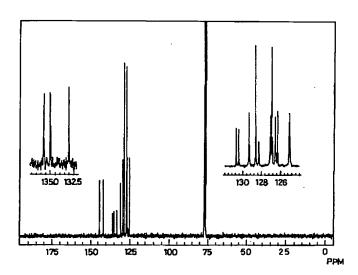
# 【図1】



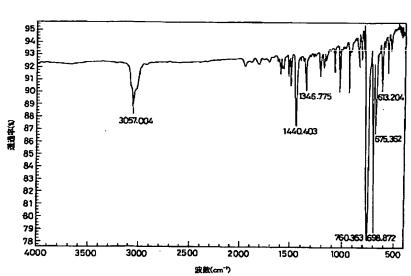
【図2】



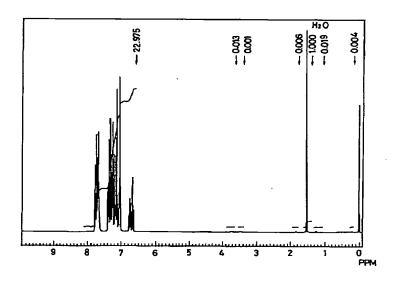
【図3】



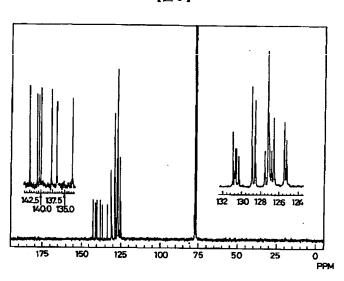




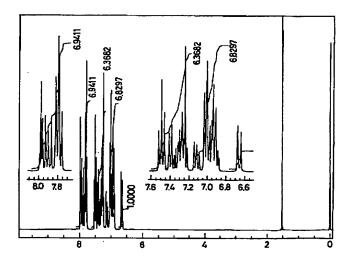
【図5】



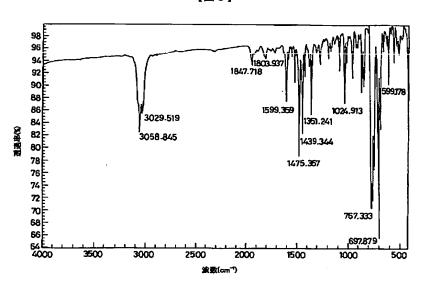
【図6】



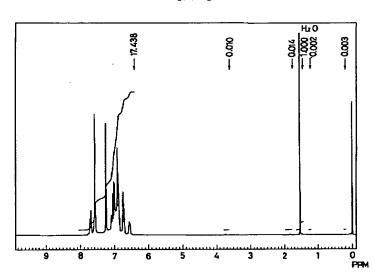
【図7】



【図8】



【図9】



フロントページの続き

(51) Int. Cl. 7

識別記号

FΙ

テーマコード(参考)

H 0 5 B 33/14

33/22

H 0 5 B 33/14

(72) 発明者 荒 健輔

東京都中央区日本橋一丁目13番1号 ティ ーディーケイ株式会社内

33/22

AB11 AB14 BB06 CA01 CA05

В

DA00 DA01 DB03 EB00 FA01

FA03

Fターム(参考) 3K007 AB00 AB02 AB03 AB04 AB06

4H006 AA01 AA03 AB92